

コヒーレントに励起された3準位系の非線形光学現象に関する研究

著者	相原 正樹
号	457
発行年	1973
URL	http://hdl.handle.net/10097/9193

氏 名（本籍）	あいはらまさき 相 原 正 樹 （山梨県）
学 位 の 種 類	工 学 博 士
学 位 記 番 号	工 博 第 4 5 7 号
学位授与年月日	昭和 4 9 年 3 月 2 6 日
学位授与の要件	学位規則第 5 条第 1 項該当
研究科専門課程	東北大学大学院工学研究科 （博士課程）応用物理学専攻
学 位 論 文 題 目	コヒーレントに励起された 3 準位系の非線形 光学現象に関する研究
論文審査委員	（主査） 教 授 稲場 文男 教 授 縄田 滋則 教 授 堀江 忠児 教 授 高橋 正 助教授 滝本 昇 助教授 渡辺 剛

論 文 内 容 要 旨

第 1 章

近年、レーザー技術の発展によるコヒーレントでエネルギー密度の高い超短光パルスの出現は、フォトン・エコーや光章動、自己誘導透過などの新しい物理現象の観測を可能にした。これらの現象は、物質系の横緩和時間よりも短い時間内に生じ、光の場と多粒子系との双方の位相が本質的な役割を果すコヒーレントに励起された系における共鳴的な非線形相互作用によって生ずるものである。

従来これらの現象に関する研究のほとんどは単純な 2 準位系におけるもので、そこは単一周波

数の光のみが取り扱われていた。しかし、物質は元来多くのエネルギー単位で構成されており、これらの現象が本質的に非線形である点からすれば、従来の2準位系における結果はごく限られたものであり、コヒーレントに励起された物質系の非線形光学現象のより一般的な取り扱いが基礎物性的にも、また応用的にも極めて重要なものと考えられる。

本研究は、以上の観点から、2つの異なった周波数を有する光とコヒーレントに励起された任意に縮退した3準位系との共鳴的相互作用に基づく非線形光学現象の一般的な完式化を行なうと共に、それらの結果を用いて3準位系における光章動およびフォトン・エコーについて系統的な理論的解析を行ない、どのような現象が生ずるかを統一的に説明することを目的としたものである。

第2章 コヒーレントに励起された2準位系の非線形光学現象に関する研究

コヒーレントに励起された共鳴媒質において生ずる非線形光学現象の基本的な概念を述べるとともに、2準位系における光章動とフォトンエコーの諸特性について具体的に概説する。

第3章 光と3準位系とのコヒーレントな共鳴的相互作用の基礎方程式

3準位系とコヒーレントなパルス光との2重共鳴相互作用を考え密度演算子を用いて完式化を行なう。Schrödinger表示の密度演算子 $\rho(t)$ からユニタリー変換

$$\rho(t) = e^{iSt} \sigma(t) e^{-iSt} \quad (1)$$

で定義される中間表示での密度演算子 $P(t)$ を導入する。ただし

$$S = \sum_{\lambda, r_{\lambda}} S_{\lambda} \left| \lambda r_{\lambda} \right\rangle \langle \lambda r_{\lambda} | \quad (2)$$

で、 $\left| \alpha_{\lambda} \Gamma_{\lambda} r_{\lambda} \right\rangle$ (Γ : 既約表現, r : Γ の基底) を簡単のため $\left| \lambda r_{\lambda} \right\rangle$ と略記し、 λ についての和は3つの準位 a, b, c についてとるものとする。 ρ に対する運動方程式としては

$$i\hbar \frac{dP(t)}{dt} = [\hbar H + H'_S, P(t)] \quad (3)$$

と表わされる。ここに、 $\hbar H = H_0 - \hbar S$ (H_0 は光が存在しない時の3準位粒子のハミルトンアン) で、 H'_S は、回転波近似を用いると

$$\begin{aligned} H'_S = & \frac{1}{2} \sum_{\mu > \nu} \frac{P_{\mu\nu} E_{\mu\nu 0}(t)}{(\Gamma_{\mu})} \sum_{r_{\mu} r_{\nu}} (e^{-i\delta_{\mu\nu}} \langle \Gamma_{\nu} \Gamma_{\nu} 1 | \Gamma_{\mu} r_{\mu} \rangle \\ & - e^{i\delta_{\mu\nu}} \langle \Gamma_{\nu} \Gamma_{\nu} -1 | \Gamma_{\mu} r_{\mu} \rangle) \left| \mu r_{\mu} \right\rangle \langle \nu r_{\nu} | \\ & + \text{hermitian adjoint} \end{aligned} \quad (4)$$

となる。ただし、 $P_{\mu\nu}$ は準位 $\mu\nu$ 間の電気双極子能率の大きさ、 $E_{\mu\nu 0}(t)$ と $\delta_{\mu\nu}$ はそれぞれ準位 $\mu\nu$ 間に共鳴している光の振幅と偏光角、 (Γ_{μ}) は Γ_{μ} の次元である。

(3)の解は時間推進演算子 $U(t, t_0)$ を用いて一般に

$$\rho(t) = U(t, t_0) \rho(t_0) U^{\dagger}(t, t_0) \quad (5)$$

の様に表わされる。 $\hbar H + H'_S$ を対角化する演算子を V とし、

$$D(t, t_0) = \hbar^{-1} V \int_{t_0}^t \{ \hbar H + H'_S(t') \} dt' V^\dagger \quad (6)$$

で D を完義すると、 $U(t, t_0)$ は

$$U(t, t_0) = V e^{-iD(t, t_0)} V^\dagger \quad (7)$$

のようになる。従って、 $\hbar H + H'_S$ の固有値と固有ケットより得られる V と D を用いて $U(t, t_0)$ を決定することにより任意の物理量の期待値を算出することができる。

本章においては、さらに3準位系における擬似電気双極子の運動方程式を導き、それが2準位系に対する単純なBlochの方程式とは異なる独特の挙動を示すことを明らかにした。

第4章 3準位系における光章動

図1に示す様な3準位系の準位 ba 間と準位 bc 間に共鳴する異なった2つの周波数を有する光と3準位系との2重共鳴相互作用を考える。時刻 t に振幅 $E_{\mu\nu 0}$ ($\mu\nu = ba, cb$)を有する階段関数状の光が入射したとすると、共鳴媒質を透過した光の振幅は、第3章の結果を用いて

$$\begin{aligned} E_{ba 0}(t) &= E_{ba 0} + E_{ba 0}^{(1)}(t) \\ &= E_{ba 0} - \frac{4\pi\omega_{cb} \ell N P_{ba}}{c \eta_{cb}} \cos r \left(\frac{1}{2} \cos^2 r \sin 2t + \sin^2 r \sin \frac{\Omega}{2} t \right), \end{aligned} \quad (8)$$

$$\begin{aligned} E_{cb 0}(t) &= E_{cb 0} + E_{cb 0}^{(1)}(t) \\ &= E_{cb 0} - \frac{2\pi\omega_{cb} \ell N P_{cb}}{c \eta_{cb}} \cos r \sin 2r \left(\sin \frac{\Omega}{2} t - \frac{1}{2} \sin \Omega t \right) \end{aligned} \quad (9)$$

となる。ここに ℓ は共鳴媒質の長さ、 N は粒子数密度、 c は光速、 $\eta_{\mu\nu}$ は屈折率で、 $r = \tan^{-1} (P_{cb} E_{cb 0} / P_{ba} E_{ba 0})$ 、 $\Omega = (P_{cb}^2 E_{cb 0}^2 + P_{ba}^2 E_{ba 0}^2)^{1/2}$ である。(8)と(9)から明らかな様に、3準位系においては、異なった遷移の結合を反映した特異な透過光波形が生ずる様になる。

本章においては、さらに共鳴状態からはずれた場合、およびエネルギー準位の縮退の影響についても解析した。特に、 $j_a = j_c = j_b - 1 = 0$ の場合の透過光波形の偏光角依存性について詳細に検討した。また、いくつかの物質に関して具体的に考察を加え、本章における理論的な結果が実験的にも十分見出し得る可能性のあることを示した。

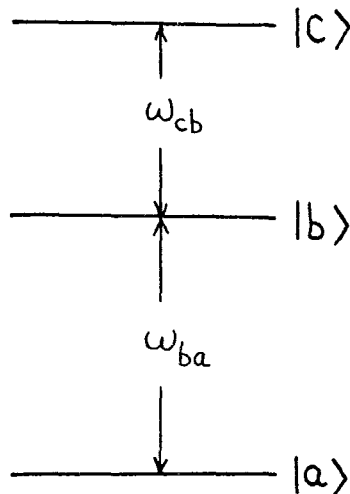


図 1

第5章 3準位系におけるフォトン・エコーの基本的特性

フォトン・エコーは、時間々隔 τ_s の2連光パルスを共鳴媒質に加えると、第1パルスから $2\tau_s$ 後の時刻にコヒーレントな自然放光が共鳴媒質から放射される現象である。5章と6章では3準位系におけるフォトン・エコーについて述べるが、本章においては、まずその基本的特性を明らかにするために非縮退3準位系について解析する。

2連光パルスを加えた後の密度演算子 $\rho(t)$ の行列要素は

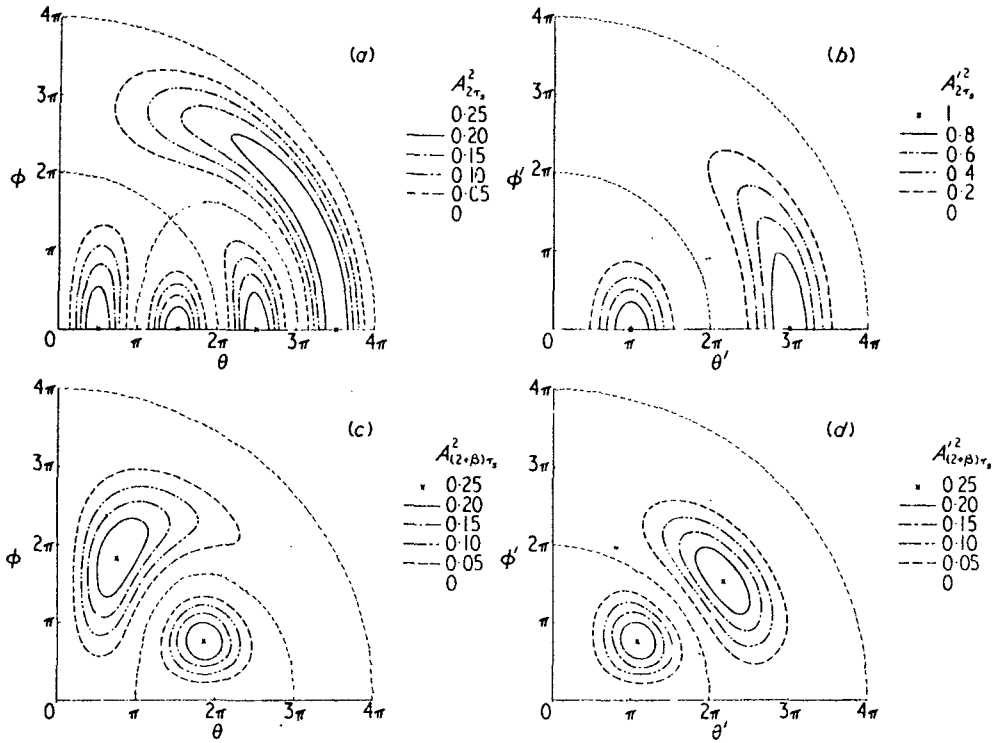
$$\langle \mu | \rho(t) | \nu \rangle = \sum_{\xi, \eta} e^{-i\Delta\omega_{\mu\nu}(t-\tau_s) + i\Delta\omega_{\eta\xi}\tau_s} \times \langle \mu | U' | \xi \rangle \langle \xi | U | a \rangle \langle \nu | U' | a \rangle^* \langle \eta | U | a \rangle^* \quad (10)$$

となり、これを用いて巨視的な電気分極を求めると、 $2\tau_s$ 以外のいくつかの時刻にもエコーが出現することが示される。ここに U' は第2パルスに対する時間推進演算子である。表1に、エコーの出現時刻とその最大強度をまとめて示す。ここに、 β は2つのスペクトルの不均一な拡がりの相関を表わすパラメータである。図2に、 $2\tau_s$ に生ずる通常のエコーおよび $(2+\beta)\tau_s$ に生ずる異常エコーの強度の第1パルスの area θ_{ba} と θ_{cb} 依存性、および第2パルスの area θ_{ba}' と θ_{cb}' 依存性を示す。3準位系に特有な異常エコーの出現は、入射光と3準位系との非線形相互作用により、第2パルスの前後で、 $\rho(t)$ の異なった行列要素間の変換が生じ、そのために多粒子系の dephase と rephase との速度が異なる過程が、それらの過程が等しい通常の過程と共に生ずることによるものである。

さらに、エコーの伝播特性についても調べて異なった遷移の結合の様相を明らかにした。また、アルカリ金属の気体やルビー結晶を用いる場合について具体的な考察を行なった。

表 1

Frequency of echo	Time when echo arises	Maximum value of echo intensity†		
		$\beta > 0$	$-1 < \beta < 0$	$\beta < -1$
ω_{ba}	$2\tau_s$	$\frac{1}{4}N^2I_{ab0}$	$\frac{1}{4}N^2I_{ab0}$	$\frac{1}{4}N^2I_{ab0}$
	$(2+\beta)\tau_s$	$\frac{1}{16}N^2I_{ab0}$	$\frac{1}{16}N^2I_{ab0}$	—
	$(1+\beta)\tau_s$	$\frac{1}{4}N^2I_{ab0}$	—	—
	$(1-\beta)\tau_s$	—	$\frac{1}{16}N^2I_{ab0}$	$\frac{1}{16}N^2I_{ab0}$
	$-\beta\tau_s$	—	—	$\frac{1}{4}N^2I_{ab0}$
ω_{cb}	$2\tau_s$	$\frac{1}{4}N^2I_{bc0}$	$\frac{1}{4}N^2I_{bc0}$	$\frac{1}{4}N^2I_{bc0}$
	$(2+\beta^{-1})\tau_s$	$\frac{1}{16}N^2I_{bc0}$	$\frac{1}{16}N^2I_{bc0}$	—
	$(1+\beta^{-1})\tau_s$	$\frac{1}{4}N^2I_{bc0}$	—	—
	$(1-\beta^{-1})\tau_s$	—	$\frac{1}{16}N^2I_{bc0}$	$\frac{1}{16}N^2I_{bc0}$
	$-\beta^{-1}\tau_s$	—	—	$\frac{1}{4}N^2I_{bc0}$
ω_{ca}	$2\tau_s$	$\frac{1}{4}N^2I_{ac0}$	$\frac{1}{4}N^2I_{ac0}$	$\frac{1}{4}N^2I_{ac0}$
	$\{1+(1+\beta)^{-1}\}\tau_s$	$\frac{1}{16}N^2I_{ac0}$	$\frac{1}{16}N^2I_{ac0}$	—
	$\{1+(1+\beta^{-1})^{-1}\}\tau_s$	$\frac{1}{16}N^2I_{ac0}$	—	$\frac{1}{16}N^2I_{ac0}$
	$(1+\beta)^{-1}\tau_s$	—	$\frac{1}{4}N^2I_{ac0}$	—
	$(1+\beta^{-1})^{-1}\tau_s$	—	—	$\frac{1}{4}N^2I_{ac0}$



第 6 章 縮退 3 準位系におけるフォト・エコー

エネルギー準位の縮退は、コヒーレントに励起された系における非線形光学現象において重要な役割を果す。本章では、任意に縮退した 3 準位系におけるフォトン・エコーの一般的な理論を展開しエコーの強度特性と偏光特性との関連性を調べた。

第 3 章の完式化によると、エコーの強度と偏光を与える巨視的な電気分極は、最終的に

$$\begin{aligned}
 \vec{P}(t) &= \frac{P_{\mu\nu}}{\text{tot}} \sum_{(\Gamma_a)\mu} \sum_{\xi, \eta} G(\alpha_{\mu\nu} t - (\alpha_{\mu\nu} + \alpha_{\eta\xi}) \tau_s) \\
 &\times \sum_{r_\mu, r_\nu} (-x \frac{\Gamma_\nu \Gamma_\mu}{\gamma_\nu \gamma_\mu} \vec{e}_+ + x \frac{\Gamma_\mu \Gamma_\nu}{\gamma_\mu \gamma_\nu} \vec{e}_-) \\
 &\times \sum_{r_\xi, r_\eta} \sum_{r_a} \langle \mu r_\mu | U' | \xi r_\xi \rangle \langle \xi r_\xi | U | a r_a \rangle \\
 &\times \langle \nu r_\nu | U' | \eta r_\nu \rangle^* \langle \eta r_\nu | U | a r_a \rangle^* e^{-i\omega_{\mu\nu} t} \\
 &+ \text{C. C.} \quad (11)
 \end{aligned}$$

となる。ここに、 G は共鳴周波数の分布の大きさを表わすパラメター、 $x \frac{\Gamma_\alpha \Gamma_\beta}{\gamma_\alpha \gamma_\beta} = (\Gamma_\alpha)^{-1/2} \langle \Gamma_\beta \Gamma_\beta | \Gamma_\alpha r_\alpha \rangle$, \vec{e}_\pm は円偏光に対する単位ベクトルで、添字 a は基底状態を表わす。

本章では、公式(11)を、 $j_a=j_b=j_c=\frac{1}{2}$, $j_a=j_c=j_a+1=1$, $j_a=j_c=j_b^{-1}=0$, $j_a=j_b=j_c=1$ および $j_a=j_b=j_c^{-1}=\frac{1}{2}$ の場合に適用しエコーの強度特性と偏光特性を導出した。

$j_a=j_b=j_c=\frac{1}{2}$ の場合を除く縮退系においては、エコーの強度は励起光パルスの area のみならずその偏光にも依存する。特に異常エコーは興味深い諸特性を有し、それらは一般に、エコーの周波数を有する励起光パルスの area や偏光によっても変化することなど、縮退 3 準位系に特有な多様な特性が明らかにされた。

第 7 章 エコー・ダイヤグラムと多連光パルス励起によるフォトン・エコー

本章では、フォトン・エコーの種々の基本的特性を導くために便利なエコー・ダイヤグラムを新たに考察し、それを用いて多連光パルスで励起した系におけるフォトン・エコーの図式解法を行ない光情報処理などに応用する場合の基礎資料を築いた。

まず、エコー・ダイヤグラムの概念を明らかにして、その作製とそれから解析的表現を得るための規則を定めた。次に、その使用法と物理的意味を理解するためにいくつかの典型的な例に対エコー・ダイヤグラムを具体的に示した。本章の後半では、エコー・ダイヤグラムを用いて多連光パルス励起によるエコー現象を解析した。特に 3 準位系においては、エコー列が異なった周波数領域に変換されて現れたり、磁場などで制御されなくても normal order echo のみが発生することなどの新しい有用な結果が得られた。

第 8 章 結 論

第 1 章から第 7 章までの研究成果を総括し、考察を加えて結論とした。

本論文においては、3 準位系における光章動とフォトン・エコーを、密度演算子と時間推進演算子を用いた一般的な完式化に基づいて系統的に解析し、3 準位系に特有な光章動波形や異常エコーの出現などいくつかの新しい現象が生ずることを理論的に明らかにした。

謝 辞

終りに、本研究に終始御指導、御鞭撻を賜わった稲場文男教授、有益なる御教示を賜わった堀江忠児教授、高橋正教授、縄田滋則教授、滝本昇助教授、渡辺剛助教授に深く感謝する次第である。

審 査 結 果 の 要 旨

原子や分子からなる多粒子系においては、その系の横緩和時間より短い時間内に系の固有遷移に共鳴するような強いコヒーレント光が入射すると、光と物質の双方の波動性が本質的役割を果たす様な過渡的な相互作用が生じる。このような研究はすぐれた単色性と高輝度特性を有するレーザーの技術的進展によって端緒が開かれたものであるが、これまではほとんど単一波長のレーザー光パルスと物質との相互作用のみが検討されていた。本研究は物質が多くのエネルギー準位で構成され、複数の異なる波長の光との共鳴的な相互作用が一般に生じうることに注目し、その基本的な相互作用過程が3準位系において現れることより、その過程によって生じるコヒーレントな非線形現象を統一的観点より理論的に解析したもので、全文8章よりなる。

第1章は総論である。第2章はコヒーレントに励起された多粒子系と共鳴レーザー光との相互作用によって生じる過渡的な非線形光学的現象を、関与する物理的過程に従って分類し、考察を加えたものである。

第3章は、本論文の最も重要な基盤をなすもので、コヒーレントに励起された3準位系と2種類のパルス光との共鳴的相互作用の一般的な定式化を密度演算子を用いて行っている。その結果導出された基礎方程式は、時間推進演算子の行列要素の関数として表わすことができ、現象を統一的に記述する方法が明らかにされたのである。

第4章は、第3章の成果を3準位系の光章動効果に適用することによって、従来のモデルでは知られていない現象が生じうることを定量的に解明したものである。

第5章と第6章は、さらにその解析をそれぞれ非縮退および縮退準位を持つ3準位系におけるフォトン・エコーの現象にまで発展させたもので、二つのスペクトル線の不均一な広がりとの相関に依存した種々の時刻に、新しいエコーが発生することを具体的に明らかにしている。このことは新しい知見である。

第7章はエコー・ダイアグラムの考察によってフォトン・エコー現象の図式的解法を試みたもので、予期される特性を直観的に把握出来る点で物理的にすぐれた方法であり、重要な成果といえる。

第8章は総括と結論である。

以上要するに本論文は、コヒーレントに励起された3準位系とレーザー光パルスとの相互作用における非線形光学現象を理論的に解明するための物理的基礎を与えたばかりでなく、工学的な応用の可能性をも示して、有用な知見を加えたもので、応用物理学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は工学博士の学位論文として合格と認める。